

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

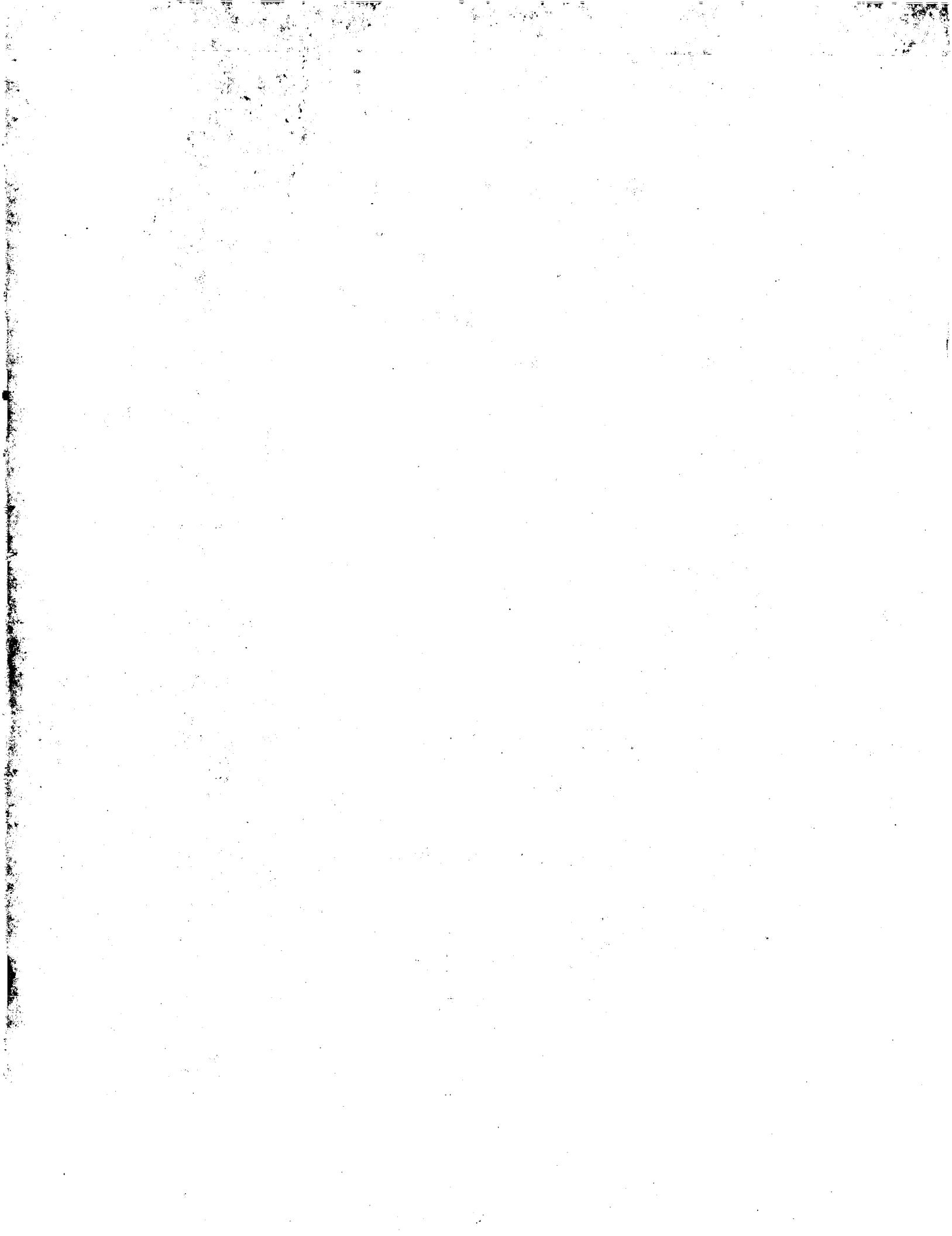
Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**



(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2000年12月14日 (14.12.2000)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 00/75226 A1

(51) 国際特許分類⁷: C08L 23/22, 23/26,
53/02, C08K 5/5415, C08G 81/02, C08J 5/12, C09K 3/10,
C09J 153/02, 123/22

Makoto) [JP/JP]; 〒655-0046 兵庫県神戸市垂水区舞
子台6丁目6-512 Hyogo (JP). 幸光新太郎 (KOMITSU,
Shintaro) [JP/JP]; 〒222-0036 神奈川県横浜市港北区
小机178-305号 Kanagawa (JP).

(21) 国際出願番号: PCT/JP00/03621

(74) 代理人: 安富康男, 外 (YASUTOMI, Yasuo et al.) ; 〒
532-0011 大阪府大阪市淀川区西中島5丁目4番20号 中
央ビル Osaka (JP).

(22) 国際出願日: 2000年6月5日 (05.06.2000)

(81) 指定国(国内): US.

(25) 国際出願の言語: 日本語

(84) 指定国(広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE,
DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

(26) 国際公開の言語: 日本語

添付公開書類:
— 國際調査報告書

(30) 優先権データ:
特願平11/157785 1999年6月4日 (04.06.1999) JP

2文字コード及び他の略語については、定期発行される
各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語
のガイドスノート」を参照。

(71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 鎌淵化学
工業株式会社 (KANEKA CORPORATION) [JP/JP]; 〒
530-8288 大阪府大阪市北区中之島3丁目2番4号 Osaka
(JP).

(72) 発明者; および
(75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 千波 誠 (CHIBA,

(54) Title: CURABLE COMPOSITION AND METHOD OF USE THEREOF

(54) 発明の名称: 硬化性組成物及びその使用方法

(57) Abstract: A curable composition comprising (A) a block copolymer having at least one block formed from an aliphatic hydrocarbon-based compound and (B) an isobutylene-based polymer having a group containing a silicon bonded with a hydrolyzable group or a hydroxyl group. The curable composition is excellent in softness and also in heat resistance, and thus can be used as a sealing agent, an adhesive agent, a pressure-sensitive adhesive agent, a composition for a gasket, a spacer for a double-glazing unit, and the like.

(57) 要約:

柔軟性に優れ、かつ、耐熱性が優れた硬化性組成物を提供する。 (A) 脂肪族炭化水素系化合物から形成されるブロックを少なくとも1種類有するブロック共重合体、及び、 (B) 加水分解性基又は水酸基と結合したケイ素基を有するイソブチレン系重合体、を含有する硬化性組成物。該組成物は、シーリング剤、接着剤、粘着剤、ガスケット用組成物、複層ガラス用スペーサーなどとして使用できる。

WO 00/75226 A1

明 紹 書
硬化性組成物及びその使用方法

技術分野

5 この発明は、ゴム系素材、例えば、タイヤ、シーリング材、ガスケットや接着剤、粘着剤、振動制御材料として好適に用いられる硬化性組成物、および、その使用方法に関する。

背景技術

10 脂肪族炭化水素系化合物からなる重合体ブロックを含有するブロック共重合体は、安価で、かつ、施工性の優れた熱可塑性樹脂として、広範な用途に用いられ、とくに、脂肪族炭化水素系化合物の重合体ブロックとスチレン系重合体ブロックとから構成されるブロック共重合体は、加熱することにより容易に溶融するため、施工性の優れた熱可塑性エラストマーとしてガスケット、シーリング材、粘接着剤、防振材等として使用されている。

しかし、脂肪族炭化水素系化合物からなる重合体ブロックを含有するブロック共重合体、特に、脂肪族炭化水素系化合物の重合体ブロックとスチレン系重合体ブロックとから構成されるブロック共重合体の場合、機械物性や加熱溶融時粘度等の諸特性は熱可塑性エラストマーの高 T_g セグメントと低 T_g セグメントの比率や各々の分子量により支配されるため、溶融時の作業性を高くしようとすると、高温時の物性低下が大きくなるという課題があった。

本発明は、上記現状に鑑み、脂肪族炭化水素系化合物から形成されるブロックを少なくとも1種類有するブロック共重合体の高温時の物性低下を改善することを目的とする。

25

発明の開示

本発明者は検討の結果、(A) 脂肪族炭化水素系化合物から形成されるブロックを少なくとも1種類有するブロック共重合体、及び、(B) 加水分解性基又は水酸基と結合したケイ素基を有するイソブチレン系重合体、を含有する硬化性組

成物が上記課題を解決することを見出した。

本発明は、(A) 脂肪族炭化水素系化合物から形成されるブロックを少なくとも1種類有するブロック共重合体、及び、(B) 加水分解性基又は水酸基と結合したケイ素基を有するイソブチレン系重合体、を含有する硬化性組成物である。

5 また本発明は、上記硬化性組成物からなるシーリング剤、上記硬化性組成物からなる接着剤、上記硬化性組成物からなる粘着剤、上記硬化性組成物からなるガスケット用組成物、及び、上記硬化性組成物からなる複層ガラス用スペーサーである。

さらに本発明は、上記硬化性組成物を溶剤に溶解した状態で施工又は成形する
10 適用方法、上記硬化性組成物を加熱条件下で施工又は成形する適用方法、及び、
上記硬化性組成物を施工又は成形した後、水分による(B)成分の縮合反応を行
15 させる使用方法でもある。

以下、本発明を詳細に説明する。

本発明で用いる(A)脂肪族炭化水素系化合物から形成されるブロックを少な
15 くとも1種類有するブロック共重合体について説明する。

脂肪族炭化水素系化合物としては重合体を形成可能なものであれば特に限定されず、例えば、エチレン、プロピレン、1-ブテン、イソブチレン、ブタジエン、イソブレンなどが挙げられる。これらは単独で用いてもよいし、複数を併用してもよい。また、これらの重合体は、水素添加して使用することも可能である。

20 (A)成分中の脂肪族炭化水素系化合物から形成されるブロック(以下、脂肪族炭化水素系ブロックともいう)としては特に制限はないが、比較的柔軟なブロックについては、(1)ブタジエン、イソブレンなどのようなジエン系化合物を単独重合させる、(2)上記ジエン系化合物を重合させた後、水素添加する、(3)エチレン、プロピレン、1-ブテン、イソブチレンなどのような炭素数1～6のオレフィン系化合物を主モノマーとして重合させる、(4)上記オレフィン系化合物とジエン系化合物とを共重合させたものをそのまま用いたり、あるいは水素添加する、ことにより得ることができる。また、比較的剛直な脂肪族炭化水素系ブロックとしては、結晶性のブロックが例示されるが、具体的には、ポリエチレンブロックやポリヘキセンブロックなどを挙げることができる。

(A) 成分中の脂肪族炭化水素系ブロック以外のブロックとしては、脂肪族炭化水素系ブロックとブロック共重合体を形成可能なブロックであれば特に制限はないが、例えば、ビニル芳香族化合物やニトリル系化合物のブロックが例示され、より具体的には、スチレン、 α メチルスチレン、アクリロニトリルのブロックなどが例示される。

本発明においては、(A) 成分のブロック共重合体として、ビニル芳香族化合物を主体としてなる重合体ブロックと脂肪族炭化水素系化合物を主体としてなる重合体ブロックとから構成されるブロック共重合体が好ましい。ここで「ある化合物を主体としてなる重合体ブロック」とは、該重合体ブロックを構成する単量体単位のうち 60% 以上、好ましくは 80% 以上をその化合物に対応する単量体単位が占めることをいう。

(A) 成分の組成は、特性を発現可能な範囲で制限はないが、入手性や高温での流動性の面から、スチレン系ブロックと、ブタジエン及び／又はイソプレン及び／又はイソブチレンのブロックよりなるブロック共重合体やその水素添加物が挙げられ、より具体的な例としては、SBS（スチレンーブタジエンースチレンブロック共重合体）、SIS（スチレンーイソプレンースチレンブロック共重合体）、SEBS（スチレンーエチレンブチレンースチレンブロック共重合体）、SEPS（スチレンーエチレンプロピレンースチレンブロック共重合体）、SIBS（スチレンーイソブチレンースチレンブロック共重合体）などが挙げられる。

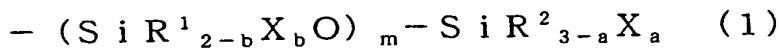
(A) 成分のブロック共重合体において、脂肪族炭化水素系ブロックと、脂肪族炭化水素系ブロック以外のブロックとの含有比率としてはとくに制限はないが、流動性と物性のバランスから、重量基準で 5 / 95 ~ 95 / 5 が好ましく、10 / 90 ~ 60 / 40 がより好ましい。ブロックの構造は、直鎖や側鎖が可能である。

(A) 成分のブロック共重合体の数平均分子量としては特に限定されないが、通常、500 ~ 1000000 程度であり、好ましくは、1000 ~ 100000 程度である。

本発明の(B) 成分である加水分解性基又は水酸基と結合したケイ素基を有するイソブチレン系重合体について説明する。本発明において、加水分解性基又は

水酸基と結合したケイ素基とは、例えば加水分解性基又は水酸基をXとした場合に、Si-X結合を有する基を表す。通常は、Si-X結合の加水分解反応によりSi-OHとH-Xを与える。

(B) 成分であるイソブチレン系重合体が有するケイ素基はよく知られた官能基であり、その代表例としては、一般式(1)：



[式中、R¹およびR²はいずれも炭素数1～20のアルキル基、炭素数6～20のアリール基、炭素数7～20のアラルキル基またはR³₃SiO-（R³は炭素数1～20の1価の炭化水素基であり、3個のR³は同じであってもよく、異なっていてもよい）で示されるトリオルガノシロキシ基であり、R¹またはR²が2個以上存在するとき、それらは同じであってもよく、異なっていてもよい。Xは加水分解性基又は水酸基であり、2個以上存在するとき、それらは同じであってもよく、異なっていてもよい。aは0～3から選ばれる整数であり、bは0～2から選ばれる整数である。ただし、a+m b ≥ 1を満たす。また、m個の(SiR¹_{2-b}X_bO)におけるbは同一である必要はない。mは0～19から選ばれる整数である。]

で表される基を挙げることができる。

一般式(1)における加水分解性基としては、特に限定されるものではなく、従来既知の加水分解性基でよいが、具体例としては、例えば、水素原子、アルコキシ基、アシルオキシ基、ケトキシメート基、アミノ基、アミド基、アミノオキシ基、メルカプト基、アルケニルオキシ基等を挙げることができる。これらのうちでは、加水分解性が温和で、取り扱いやすいという点から、アルコキシ基が特に好ましい。

この加水分解性基や水酸基は1個のケイ素原子に1～3個の範囲で結合することができ、(a+m b)は1～5の範囲であることが好ましい。加水分解性基や水酸基が反応性ケイ素基中に2個以上結合する場合には、それらは同じであっても、異なっていてもよい。この反応性ケイ素基を形成するケイ素原子は1個でもよく、2個以上であってもよいが、シロキサン結合等により連結されたケイ素原子の場合には、20個のものまであるのが好ましい。特に、一般式(2)：

$-S_i R^2_{3-a} X_a \quad (2)$

(式中、 R^2 、 X および a は前記と同じである。)

で表される反応性ケイ素基が入手容易であるので好ましい。

反応性ケイ素基は、イソブチレン系重合体の1分子あたり平均して少なくとも
5 1個、好ましくは1. 1～5個存在する。分子中に含まれる反応性ケイ素基の数
が1個未満になると、硬化性が不充分になり、良好なゴム弾性挙動を発現し難く
なる。反応性ケイ素基は、イソブチレン系重合体分子鎖の末端に存在していても
よく、内部に存在していてもよく、両方に存在していてもよい。特に反応性ケイ
素基の少なくとも1個を分子鎖末端に有する場合には、最終的に形成される硬化
10 物に含まれるイソブチレン系重合体成分の有効網目鎖量が多くなるため、高強度
で高伸びのゴム状硬化物が得られやすくなる等の点から好ましい。また、これら
反応性ケイ素基を有するイソブチレン系重合体は単独で使用してもよく、2種以
上併用してもよい。

本発明におけるイソブチレン系重合体とは、重合体中にイソブチレン単位を5
15 0重量%以上、好ましくは80重量%以上、より好ましくは90重量%以上含有
するものをいう。イソブチレン以外の单量体としては、上述した脂肪族炭化水素
系化合物や、スチレン、 α メチルスチレン、アクリロニトリルなどが挙げられる。

イソブチレン系重合体の数平均分子量は500～100000程度であるのが
好ましく、特に1000～40000程度のものが取り扱いやすさなどの点から
20 好ましい。さらに、分子量分布(M_w/M_n)に関しては、同一分子量における
粘度が低くなるという点で分子量分布が狭いほど良く、ゲルパーミュレーション
クロマトグラフィー(GPC)法(移動相:テトラヒドロフラン、スチレン換算
)で、2. 0以下が好ましく、1. 5以下であることがより好ましい。

また、分子内に反応性ケイ素基を有するイソブチレン系重合体は、イソブチレ
ンを主とする单量体中に、反応性ケイ素基を有するビニルシラン類やアリルシラ
ン類を添加し、共重合させることによって製造される。さらに、分子内部および
分子末端の両方に反応性ケイ素基を有するイソブチレン系重合体は、上記分子末
端に反応性ケイ素基を有するイソブチレン系重合体を製造する際の重合にあたつ
て、主鎖を構成する单量体以外に反応性ケイ素基を有するビニルシラン類やアリ

ルシラン類等を共重合させた後、末端に反応性ケイ素基を導入することによって製造することができる。

本発明の組成物の諸特性は、(A)成分、(B)成分の分子構造、(A)/(B)成分の比率、その他に含有する成分の特性により設計、コントロールされる。

5 本発明の(A)成分と(B)成分の量比に制限がないが、特性を出す必要から、重量基準で(A)/(B)が1/99~99/1の範囲であることが好ましく、より好ましくは10/90~90/10である。

本発明の硬化性組成物は、(B)成分であるイソブチレン系重合体が有するケイ素基に結合する加水分解基が一部、または、全部、加水分解し、シロキサン結合を形成(シラノール縮合反応)することで、特に優れた特性を発現する。

10 (B)成分をシラノール縮合反応により硬化させるために、本発明の組成物には、シラノール縮合触媒[(C)成分]を添加することが可能である。シラノール縮合触媒の具体例としては、例えば、錫、アルミ、チタン系化合物、あるいはアミン系化合物やアミン系化合物とカルボン酸等との塩；過剰のポリアミンと多塩基酸とから得られる低分子量ポリアミド樹脂；過剰のポリアミンとエポキシ化合物との反応生成物； γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、N-(β -アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシラン等のアミノ基を有するシランカップリング剤系のアミン化合物；等のシラノール縮合触媒、さらには他の酸性触媒、塩基性触媒等の公知のシラノール縮合触媒等が例示できる。シラノール縮合触媒は、使用条件に合わせて、自由に選択されるが、貯蔵安定性と硬化速度、入手性の面から、錫系化合物、特に、ジブチル錫化合物が好ましい。上記シラノール縮合触媒は1種類のみで使用しても良いし、2種類以上混合使用しても良い。シラノール縮合触媒は硬化速度や貯蔵安定性の見地から、反応性ケイ素基を有するイソブチレン系重合体(B)100部(以下、重量部のことをいう)に対し、20 0.01~50部の範囲で使用するのが好ましい。特に、0.1~30部、さらには、0.1~5部の範囲で使用するのが好ましい。

本発明の組成物には各用途に合わせた要求特性に応じて、上記(A)成分、(B)成分に加えて、加水分解性基含有シラン化合物[(D)成分]、可塑剤[(E)成分]、粘着付与樹脂[(F)成分]を適宜配合することができる。

加水分解性基含有シラン化合物〔(D)成分〕は接着性向上や硬化性、貯蔵安定性調整等の効果があり、必要特性に合わせて適宜使用できる。加水分解性基含有シラン化合物種は、使用可能な範囲で特に制限ないが、例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、オキシム基等の加水分解性基を有したもののが例示される。加水分解性基含有シラン化合物中に存在するシリル基以外の官能基としては、使用可能な範囲で特に制限ないが、ビニル基、メタクリル基、アクリル基、メルカプト基、水酸基、イソシアネート基、アミノ基、アミド基、グリシジル基等が例示される。より具体的な例として、エチルシリケート、シリケート縮合物、ビニルトリメトキシシラン、3-メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、3-アミノプロピルトリメトキシシラン、3-アミノプロピルメチルジメトキシラン、3-アミノプロピルメチルジエトキシシラン、3-アミノプロピルトリエトキシシラン、N-メチル-3-アミノプロピルトリメトキシシラン、N-(β -アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシシラン、3-イソシアナトプロピルトリメトキシラン、3-イソシアナトプロピルトリエトキシシラン、3-グリシジルプロピルトリメトキシシラン等が例示される。

上記シラン化合物は、反応性ケイ素基を有するイソブチレン系重合体(B)100部に対し、0.01~50部の範囲で使用するのが好ましい。特に、0.1~30部、さらには、1~10部の範囲で使用するのが好ましい。

上記シラン化合物は1種類のみで使用しても良いし、2種類以上混合使用しても良く、例えば、貯蔵安定性の意味から、シリケート、ビニルトリメトキシシラン、3-メタクリロキシプロピルトリメトキシシランから選ばれる1種以上の化合物を使用し、さらに、接着性付与の面から、3-アミノプロピルトリメトキシラン、3-アミノプロピルメチルジメトキシシラン、3-アミノプロピルメチルジエトキシシラン、3-アミノプロピルトリエトキシシラン、N-メチル-3-アミノプロピルトリメトキシシラン、N-(β -アミノエチル)アミノプロピルメチルジメトキシラン、3-イソシアナトプロピルトリメトキシシラン、3-イソシアナトプロピルトリエトキシシラン、3-グリシジルプロピルトリメトキシシランから選ばれ

る1種以上の化合物を使用するという使用方法も可能である。

可塑剤〔(E)成分〕は流動特性を調整するためのものであり、必要に応じて、一般的に使用されている可塑剤から自由に選択できるが、本発明の(B)成分であるイソブチレン重合体と相溶性のよいものがより好ましく、具体的には、プロセスオイル、オレフィン系オリゴマー、ポリブテン、塩素化オレフィン、フタル酸エステル水添物、エステル系オルゴマーなどが例示される。これらの可塑剤は、単独で使用してもよく、また2種以上を併用してもよく、また、これらの可塑剤と他の可塑剤、例えば、フタル酸エステルやアジピン酸エステル等を使用することも可能である。可塑剤の使用量は、他の配合組成と目標特性により決定し、使用可能な範囲において特に制限はないが、(A)成分と(B)成分の合計100部に対し、10～1000部の範囲で使用するのが好ましい。特に、10～200部の範囲で使用するのが好ましい。

粘着付与樹脂〔(F)成分〕は、粘着性、接着性、樹脂相溶性、粘度制御等の調整に使用するものであり、一般的に使用されるものの中から目的に応じて自由に選択でき、例えば、石油樹脂系、水添石油樹脂系、フェノール系、テルペン系、ロジンエステル系、変性テルペン系、水添テルペン系、ピネン系、クマロンインデン系、スチレン系などが例示される。粘着付与樹脂の使用量は、他の配合組成と目標特性により決定し、使用可能な範囲において特に制限はないが、(A)成分と(B)成分の合計100部に対し、2～1000部の範囲で使用するのが好ましい。特に、10～100部の範囲で使用するのが好ましい。

本発明の組成物には各用途に合わせた要求特性に応じて、上記成分以外に、必要に応じて、熱可塑性樹脂、ワックス類、充填材、ヒンダードフェノール系やヒンダードアミン系の酸化防止剤や紫外線吸収剤、光安定剤、顔料、界面活性剤、発泡剤、接着性付与剤等を適宜配合することができる。

本発明に使用される熱可塑性樹脂は、硬度や強度、延伸性等の特性付与、コストダウン、成形性調整等の目的で使用され、目的に合わせて、プラスチックス、ゴム等から選択することができるが、例えば、ポリエチレン、ポリプロピレン、 α -オレフィン共重合体、EPDM、ブチルゴム、ポリイソブチレン、ポリスチレン、ポリ塩化ビニル等が例示される。

本発明に使用される充填材は、硬度や強度、延伸性等の特性付与、コストダウン等の目的で使用され、炭酸カルシウム、クレー、タルク、シリカ、アルミナ等が使用可能であり、また、難燃性付与のため、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、リン酸アンモニウム等の難燃性充填剤が使用できる。また、吸湿性付与の目的から、ゼオライト、シリカゲル、モレキュラーシーブ等の吸湿性充填剤を使用することができる。

本発明の組成物の製造方法としては、特に制限はないが、例えば、(A)成分と(B)成分および上記各成分を、ミキサーラヨール、ニーダー、成形機等を用いて混練する方法、適量の溶剤に成分を溶解して混合する方法が有効である。

本発明の組成物を成形する方法としては、通常の方法が使用でき、例えば、押出成形、射出成形、圧縮成形等の各種成形方法が例示される。また、本発明の組成物を施工する方法としては、通常の方法が使用でき、例えば、ホットメルトアプライケーターを用いた施工方法、溶剤希釈したものを室温または加熱下で塗布後、室温または加熱下で溶剤を揮散させる方法等が例示される。

本発明の組成物は(B)成分をシラノール縮合反応により硬化させることにより、特に優れた特徴を発現する。シラノール縮合反応には、水分の供給が有効であり、本発明における水分の供給方法としては、特に制限はないが、例えば、(1)組成物の混練時に水分を供給する方法、(2)混練した組成物に成形直前に、水分を供給する方法、(3)混練した組成物を成形した後、水分を供給する方法、などが好ましい。

必要な水分の供給源として水あるいは金属塩の水和物を使用することも可能である。金属塩の水和物は通常市販されているものを広く用いることができ、例えばアルカリ土類金属塩の水和物、その他の金属塩の水和物等が挙げられる。これらの中でも、アルカリ金属塩の水和物及びアルカリ土類金属塩の水和物が好ましく、具体的には $MgSO_4 \cdot 7H_2O$ 、 $Na_2CO_3 \cdot 10H_2O$ 、 $Na_2SO_4 \cdot 10H_2O$ 、 $Na_2S_2O_3 \cdot 5H_2O$ 、 $Na_3PO_4 \cdot 12H_2O$ 、 $Na_2B_4O_7 \cdot 10H_2O$ 等が挙げられる。金属塩の水和物は、反応性ケイ素基を有するイソブチレン系重合体(B)100部に対し、0.01~50部の範囲で使用するのが好ましい。特に、0.1~30部、さらには、1~20部、さらには、2~10部

の範囲で使用するのが好ましい。上記金属塩の水和物は1種類のみで使用しても良いし、2種類以上混合使用しても良い。

本発明の硬化性組成物は、ゴム系素材、例えば、タイヤ、シーリング材、ガスケットや接着剤、粘着剤として特に好適に用いられるばかりではなく、食品用途、
5 日用雑貨用途、玩具・運動用具用途、文具用途、自動車内外装用途、土木シート
・防水シート等の土木・建築用途、AV・家電機器用途、OA・事務機器用途、
衣料・履き物用途、テキスタイル用途、各種カテーテル・容器・キャップ等の医
療用途、紙オムツ・生理用品等の衛生用品、包装輸送資材、電線被覆・ケーブル
・コネクター・プラグ等の電線用途等、防振、免振、制振といった振動制御材料、
10 アスファルト改質剤、樹脂改質剤などに利用可能である。

以下に具体的な用途における使用方法を例示するが、本発明はこれらの例示によつて何ら限定されるものではない。

(A) 成分、特に、スチレン系ブロック重合体は、従来、粘着剤、接着剤の主成分として広く使用されており、それらの用途で本発明の硬化性組成物を有効に
15 使用することが可能である。

例えば、粘着剤または接着剤として使用する場合、従来、スチレン系ブロック重合体〔(A) 成分〕を主成分とした組成物の場合、常温での特性は優れているが、環境温度が高くなると、流動してしまうという問題点があった。本発明の硬化性組成物を用いた場合、(B) 成分であるイソブチレン系重合体がシラノール
20 縮合反応により架橋するため、スチレン系ブロック重合体〔(A) 成分〕の特性を大幅に低下させることなく、高温で流動を抑制することができる。

上記粘着剤または接着剤の使用方法は、通常使用できる範囲で制限はないが、
例えば、基材上に加熱溶解(ホットメルト)または溶剤希釈して塗布した硬化性組成物に、水分を供給しシラノール縮合反応を進める方法、塗布前に水分を添加
25 する方法が使用できる。前者の方法を用いる場合、水蒸気湿分の供給は、空气中の水分使用や、スチームや加湿工程、水への浸せき等により行うことが可能であり、硬化性組成物の厚みを比較的薄く、好ましくは、10mm以下にすることにより、より効率的な製造が可能である。

上記粘着剤または接着剤の具体的な用途は、特に制限がないが、粘着テープ、

ホットメルト接着剤としての使用が可能であり、耐候性、耐熱性が良好であることから、建築、電気、自動車等の分野で使用される。

(A) 成分、特に、スチレン系ブロック重合体は、また、ガスケット、シーリング剤、成形体の主成分としても広く使用されており、それらの用途で本発明の
5 硬化性組成物を有効に使用できる。

当該用途では、従来、成形性（高温時の流動性）と使用時の物性を（A）成分の分子構造、例えば、スチレン系ブロック重合体の場合は、脂肪族炭化水素系ブロックとスチレン系ブロックの分子量、比率、構造、低粘度添加物によりコントロールしており、成形性（高温時の流動性）の良いものは、強度や高温時の
10 物性が低下するという問題があった。本発明の硬化性組成物では、（B）成分であるイソブチレン系重合体の構造を適宜選択することにより、スチレン系ブロック重合体〔（A）成分〕の特性を大幅に低下させることなく、成形性が良好で、かつ、物性低下を抑制することができる。

上記のガスケット、シーリング剤、成形体の製造方法は、通常使用できる範囲で制限はないが、良好な成形性を得るには、シラノール縮合反応の制御が有効であり、例えば、成形機、または、アプリケーターから加熱溶解状態で吐出された硬化性組成物に、水分を供給しシラノール縮合反応を進める方法、吐出前に水分を添加する方法を挙げることができる。

水分を供給しシラノール縮合反応を進める方法を用いる場合、水分の供給は、
20 空気中の水分使用や、スチームや加湿工程、水への浸せき等により行うことが可能である。

吐出前に水分を添加する方法の場合、各種添加方法が選択でき、例えば、（1）水分および／または（C）成分であるシラノール縮合触媒を、吐出前に混合機、または、スタティックまたはメカニカルミキサーにより混合する方法、（2）温度依存性の高いシラノール触媒を添加し、温度変化により反応を制御する方法、
25 （3）水を吸着させた化合物を添加し、温度変化により反応を制御する方法等が例示される。

上記ガスケット、シーリング剤、成形体の具体的な用途は、特に制限がないが、ホットメルト系シーリング材、建築用ガスケット材、自動車用成形体、振動制御

材料が例示される。これらの用途では、成形体として成形して使用する、または、基材上に塗布して施工する等の製造方法が取られ、生産性の面から、加熱溶融による成形方法が有効である。

また、本発明の硬化性組成物は、複層ガラス用スペーサーおよび／または複層ガラス用シーリング材として有効である。従来、複層ガラスに用いる樹脂としては、低透湿性、耐候性の面から、ブチル系ホットメルトシーリング材が知られているが、常温での硬度、強度と高温での流動性とのバランスを確保することが困難であり、 α オレフィン併用や金属板の使用等の改善が実施されているが、高温での物性低下等の十分な特性を有していない。本発明の硬化性組成物を用いることにより、高温での物性低下の改善が可能である。当該用途では、耐候性の面から、(A)成分として、SEBS、SEPS、SIBSの使用が好ましく、特に、低透湿性の面から、SIBSが好ましい。また、本発明の成分の他に、必要特性に合わせて、ポリエチレン、ポリプロピレン、 α -オレフィン共重合体、EPDM、ブチルゴム、ポリイソブチレンなどの熱可塑性樹脂や、ゼオライト等の吸湿化合物の添加が有効である。

発明を実施するための最良の形態

以下実施例により本発明をさらに具体的に説明する。尚、本発明はこれらの実施例によって何ら限定されるものではなく、その要旨を変更しない範囲において適宜変更実施可能である。

(実施例 1)

(A) 成分であるクレイトンD-1107（シェルジャパン製）100重量部、
(B) 成分である分子末端にメチルジメトキシ基を含有するイソブチレン重合体
[数平均分子量10400、分子量分布(GPC法)1.2、1分子あたりのケ
25 イ素基量(¹H-NMR法)1.5~1.9]77重量部、(C) 成分であるシ
ラノール縮合触媒であるネオスタンU-220（日東化成製）2重量部、(D)
成分であるシランカップリング剤A-174（日本ユニカ一製）3重量部、(E)
(F) 成分であるパラフィン系プロセスオイルPS-32（出光興産製）148重量
部、(F) 成分であるテルペン系粘着付与樹脂Px-800（ヤスハラケミカル

5) 86重量部、パラフィンワックス135F（日本製鐵製）57部を乾燥窒素フロード、160℃～120℃で混合し、均一な組成物を得た。この組成物を、120℃溶融下、ホットメルトアプリケーターを用いて、PETフィルム上に、厚さ0.5mmとなるように施工し、冷却後、粘着剤を得た。この粘着剤を、23℃55%RHに3日間、50℃80%RHに15時間放置した。この粘着剤をSUS板に貼り、120℃下に2時間放置したが、粘着剤の溶解はみられなかった。

（実施例2）

10 (A) 成分であるクレイトンD-1107（シェルジャパン製）100重量部、
(B) 成分である分子末端にメチルジメトキシ基を含有するイソブチレン重合体
[数平均分子量10400、分子量分布（GPC法）1.2、1分子あたりのケイ素基量（¹H-NMR法）1.5～1.9] 77重量部、(C) 成分であるシリノール縮合触媒であるネオスタンU-220（日東化成製）2重量部、(D)
成分であるシランカップリング剤A-174（日本ユニカ一製）3重量部、(E)
15) 成分であるパラフィン系プロセスオイルPS-32（出光興産製）148重量部、(F) 成分であるテルペン系粘着付与樹脂Px-800（ヤスハラケミカル）
86重量部を濃度50%になるように80℃～100℃でトルエンに溶解した後、PET上に塗厚が50μmになるようにバーコーダーを用いて塗布し、120℃オーブンで10分間放置し、粘着剤を得た。この粘着剤を、50℃80%RHに5日間養生した後、SUS板に貼り、120℃下に2時間放置が、粘着剤の
20 溶解はみられなかった。

（比較例1）

25 (A) 成分であるクレイトンD-1107（シェルジャパン製）100重量部、
(E) 成分であるパラフィン系プロセスオイルPS-32（出光興産製）125重量部、(F) 成分であるテルペン系粘着付与樹脂Px-800（ヤスハラケミカル）86重量部、パラフィンワックス135F（日本製鐵製）57部を実施例1と同様な方法で、粘着剤を得た。この粘着剤を、23℃55%RHに3日間、50℃80%RHに15時間放置した。この粘着剤をSUS板に貼り、120℃下に30分以内で、粘着剤は溶解し、PETフィルム周辺にはみ出した。

（比較例2）

(A) 成分であるクレイトンD-1107（シェルジャパン製）100重量部、
(E) 成分であるパラフィン系プロセスオイルPS-32（出光興産製）125
重量部、(F) 成分であるテルペン系粘着付与樹脂Px-800（ヤスハラケミ
カル）86重量部を実施例2と同様な方法で、粘着剤を得た。この粘着剤を、5
5 0°C 80%RHに5日間養生した後、SUS板に貼り、120°C下に1時間程度
で、粘着剤が溶解した。

(実施例3)

(A) 成分であるタフテック1031（旭化成製）100重量部、(B) 成分
である分子末端にメチルジメトキシ基を含有するイソブチレン重合体〔数平均分
10 子量10400、分子量分布(GPC法)1.2、1分子あたりのケイ素基量(
¹H-NMR法)1.5~1.9〕77重量部、(C) 成分であるシラノール縮
合触媒であるScat-27（三共有機化学製）2重量部、(E) 成分であるパ
ラフィン系プロセスオイルPS-32（出光興産製）27重量部を、160°Cに
設定したラボプラスミル（東洋精機社製）を用いて混合し、均一な組成物を得
15 た。この組成物の溶融粘度をキャピラリーレオメーター（島津製作所製）を用い
て測定した結果、100°Cで930Pa·sであった。この組成物に、140°C
で溶解混練しながら、吐出直前に水を混練した後、吐出した結果、透明な成形体
を得た。この成形体の23°CでのJIS-A硬度は48であった。この成形体を
100°Cで一週間放置したが、形状の変化は見られなかった。

20 (実施例4)

(A) 成分であるタフテック1031（旭化成製）400重量部、(B) 成分
である分子末端にメチルジメトキシ基を含有するイソブチレン重合体〔数平均分
子量10400、分子量分布(GPC法)1.2、1分子あたりのケイ素基量(
¹H-NMR法)1.5~1.9〕77重量部と(E) 成分であるパラフィン系
25 プロセスオイルPS-32（出光興産製）23重量部、(C) 成分であるシラノ
ール縮合触媒であるScat-27（三共有機化学製）2重量部を、160°Cに
設定したラボプラスミル（東洋精機社製）を用いて混合し、均一な組成物を得
た。この組成物の溶融粘度をキャピラリーレオメーター（島津製作所製）を用い
て測定した結果、140°Cで1300Pa·sであった。この組成物に、140

℃で溶解混練しながら、吐出直前に水を混練した後、吐出した結果、透明な成形体を得た。この成形体の23℃でのJIS-A硬度は72であった。この成形体を120℃で一週間放置したが、形状の変化は見られなかった。

(比較例3)

5 (A) 成分であるタフテック1031(旭化成製)100重量部、分子末端にアリル基を含有するイソブチレン重合体[数平均分子量10200、分子量分布(GPC法)1.2]77重量部と(E)成分であるパラフィン系プロセスオイルPS-32(出光興産製)23重量部、(C)成分であるシラノール縮合触媒であるScat-27(三共有機化学製)2重量部で160℃に設定したラボプラスミル(東洋精機社製)を用いて混合し、均一な組成物を得た。この組成物の溶融粘度をキャピラリーレオメーター(島津製作所製)を用いて測定した結果、100℃で900Pa·sであった。この組成物に、140℃で溶解混練しながら、吐出した結果、透明な成形体を得た。この成形体は実施例3に比較してタックが多く、23℃でのJIS-A硬度は28と実施例3に比較して低くなかった。
10 15 この成形体を100℃で一週間放置した結果、融解が見られ、サンプルが変形した。

(比較例4)

(A) 成分であるタフテック1031(旭化成製)400重量部、分子末端にアリル基を含有するイソブチレン重合体[数平均分子量10200、分子量分布(GPC法)1.2]77重量部と(E)成分であるパラフィン系プロセスオイルPS-32(出光興産製)23重量部、(C)成分であるシラノール縮合触媒であるScat-27(三共有機化学製)2重量部で160℃に設定したラボプラスミル(東洋精機社製)を用いて混合し、均一な組成物を得た。この組成物の溶融粘度をキャピラリーレオメーター(島津製作所製)を用いて測定した結果、140℃で1200Pa·sであった。この組成物に、140℃で溶解混練しながら、吐出した結果、透明な成形体を得た。この成形体の23℃でのJIS-A硬度は60と実施例4に比較して低くなかった。この成形体を120℃で一週間放置した結果、サンプルの一部に融解が見られた。

(比較例5)

(A) 成分であるタフテック 1031（旭化成製）の溶融粘度をキャピラリーレオメーター（島津製作所製）を用いて測定した結果、160℃で1100 Pa · s であった。この組成物に、140℃で溶解しようとしたが、粘度が高く、吐出できなかった。

5 (実施例 5)

(A) 成分であるスチレン-イソブチレン-ステレンブロック共重合体（以下 SIBS と略：数平均分子量は 89,000、分子量分布は 1.18）100 重量部、(B) 成分である分子末端にメチルジメトキシ基を含有するイソブチレン重合体 [数平均分子量 5600、分子量分布 (GPC 法) 1.3、1 分子あたりのケイ素基量 (¹H-NMR 法) 1.5 ~ 1.9] を 50 重量部、イルガノックス 1010（チバガイギー製）0.5 部、オクチル酸錫（日東化成（製）ネオスタン U-28）1.5 重量部とラウリルアミン（花王（製）ファーミン 20D）0.25 重量部とをあらかじめ室温下で混合しておいたもの 1.75 重量部を、170℃に設定したラボプラストミル（東洋精機社製）で 15 分間混練してゴム組成物を製造した。得られたゴム組成物のゲル分率は 30% 以上であった。該ゴム組成物を 170℃で圧縮成形しシートを作製した。

(比較例 6)

SIBS 100 重量部、数平均分子量 206,000 のブチルゴム（ブチル 365、JSR 製）50 重量部、イルガノックス 1010（チバガイギー製）0.5 部を、170℃に設定したラボプラストミル（東洋精機社製）で 15 分間混練してゴム組成物を製造した。得られたゴム組成物のゲル分率は 1% 未満であった。該ゴム組成物を同様に 170℃で圧縮成形し、シートを作製した。

上記の方法で作製した、シートを 120℃にて、10 日間保存した結果、実施例 5 のシートはもとの形状を保っていたのに比べ、比較例 6 のものでは溶融して原形をとどめていなかった。よって、本発明の樹脂組成物における耐熱性が改善されていることが確認された。

産業上の利用の可能性

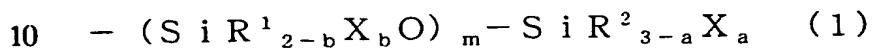
本発明のゴム組成物は、柔軟性、機械物性、成形・加工性のバランスに優れ、

耐熱性も良好である。このため、ゴム系素材、例えば、タイヤ、シーリング材、ガスケットや接着剤、粘着剤として特に好適に用いられるばかりではなく、食品用途、日用雑貨用途、玩具・運動用具用途、文具用途、自動車内外装用途、土木シート・防水シート等の土木・建築用途、AV・家電機器用途、OA・事務機器用途、衣料・履き物用途、テキスタイル用途、各種カテール・容器・キャップ等の医療用途、紙オムツ・生理用品等の衛生用品、包装輸送資材、電線被覆・ケーブル・コネクター・プラグ等の電線用途等、防振、免振、制振といった防振材料に利用可能である。

請求の範囲

1. (A) 脂肪族炭化水素系化合物から形成されるブロックを少なくとも1種類有するブロック共重合体、及び、(B) 加水分解性基又は水酸基と結合したケイ素基を有するイソブチレン系重合体、を含有することを特徴とする硬化性組成物。

2. (B) 成分であるイソブチレン系重合体において、加水分解性基又は水酸基と結合したケイ素基が、一般式(1)：



[式中、 R^1 および R^2 はいずれも炭素数1～20のアルキル基、炭素数6～20のアリール基、炭素数7～20のアラルキル基または R^3_3SiO- (R^3 は炭素数1～20の1価の炭化水素基であり、3個の R^3 は同じであってもよく、異なるっていてもよい)で示されるトリオルガノシロキシ基であり、 R^1 または R^2 が2個以上存在するとき、それらは同じであってもよく、異なっていてもよい。Xは加水分解性基又は水酸基であり、2個以上存在するとき、それらは同じであってもよく、異なっていてもよい。aは0～3から選ばれる整数であり、bは0～2から選ばれる整数である。ただし、 $a+mb \geq 1$ を満たす。また、m個の $(SiR^{1}_{2-b}X_bO)$ におけるbは同一である必要はない。mは0～19から選ばれる整数である。]

で表される基である請求項1記載の硬化性組成物。

3. (A) 成分のブロック共重合体が、ビニル芳香族化合物を主体としてなる重合体ブロックと脂肪族炭化水素系化合物を主体としてなる重合体ブロックとから構成されるブロック共重合体である請求項1又は2記載の硬化性組成物。

4. さらに、(C) 成分として、シラノール縮合触媒を含有する請求項1～3記載の硬化性組成物。

5. さらに、(D) 成分として、加水分解性基含有シラン化合物を含有する請求項 1～4 記載の硬化性組成物。
6. さらに、(E) 成分として、可塑剤を含有する請求項 1～5 記載の硬化性組成物。
7. さらに、(F) 成分として、粘着付与樹脂を含有する請求項 1～6 記載の硬化性組成物。
- 10 8. (B) 成分であるイソブチレン系重合体は、加水分解性基又は水酸基と結合したケイ素基を 1 分子あたり平均して少なくとも 1 個有するものである請求項 1～7 記載の硬化性組成物。
- 15 9. (B) 成分であるイソブチレン系重合体は、加水分解性基又は水酸基と結合したケイ素基を少なくとも 1 個、重合体の末端に有するものである請求項 1～8 記載の硬化性組成物。
10. (B) 成分であるイソブチレン系重合体の数平均分子量が 1 0 0 0～4 0 0 0 である請求項 1～9 記載の硬化性組成物。
- 20 11. (B) 成分であるイソブチレン系重合体の分子量分布 (M_w/M_n) が 1.5 以下である請求項 1～10 記載の硬化性組成物。
- 25 12. (A) 成分であるブロック共重合体が、SBS、SIS、SEBS、S E P S 及び S I B S からなる群より選択される少なくとも 1 種である請求項 1～11 記載の硬化性組成物。
13. 請求項 1～11 記載の硬化性組成物からなるシーリング剤。

14. 請求項1～11記載の硬化性組成物からなる接着剤。

15. 請求項1～11記載の硬化性組成物からなる粘着剤。

5 16. 請求項1～11記載の硬化性組成物からなるガスケット用組成物。

17. 請求項1～11記載の硬化性組成物からなる複層ガラス用スペーサー。

18. 請求項1～11記載の硬化性組成物の施工又は成形への適用方法であつて、該硬化性組成物を加熱条件下で施工又は成形することを特徴とする適用方法。

19. 請求項1～11記載の硬化性組成物の施工又は成形への適用方法であつて、該硬化性組成物を溶剤に溶解した状態で施工又は成形することを特徴とする適用方法。

15 20. 請求項1～11記載の硬化性組成物の使用方法であって、該硬化性組成物を施工又は成形した後、水分による(B)成分の縮合反応を進行させることを特徴とする使用方法。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/03621

- A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**
- Int.Cl⁷, C08L 23/22, C08L 23/26, C08L 53/02, C08K 5/5415, C08G 81/02, C08J 5/12, C09K 3/10, C09J 153/02, C09J 123/22

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷, C08L 1/00-101/16

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
 Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2000
 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2000 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2000

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
 WPI

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
PX	JP, 11-158331, A (Kanegafuchi Chem. Ind. Co., Ltd.), 15 June, 1999 (15.06.99), Claims; Column 6, lines 3 to 12; Column 7, line 4 to Column 8, line 5 (Family: none)	1-12, 18, 20
X	WO, 97/48778, A1 (HENKEL TEROSON GMBH), 24 December, 1997 (24.12.97), See abstract, & EP, 906378, A1 & DE, 19624236, A1	1-3, 8, 9, 12, 13-15, 17
A	EP, 758029, A2 (Kanegafuchi Chemical Industry Co., Ltd.), 12 February, 1997 (12.02.97), Claims & JP, 8-81599, A & US, 5804253, A	1-20
A	EP, 312967, A1 (KANEGAFUCHI KAGAKU KOGYO KABUSHIKI KAISHA), 26 April, 1989 (26.04.89), Claims & JP, 1-198673, A & US, 5120379, A	1-20

Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T"	later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X"	earlier document but published on or after the international filing date
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y"	document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&"	document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means		document member of the same patent family
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed		

Date of the actual completion of the international search
 09 August, 2000 (09.08.00)

Date of mailing of the international search report
 22 August, 2000 (22.08.00)

Name and mailing address of the ISA/
 Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/03621

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	EP, 839864, A2 (Kaneka Corporation), 06 May, 1998 (06.05.98), Claims & JP, 10-182904, A & CA, 2219508, A	1-20
A	JP, 4-159371, A (Kanegafuchi Chem. Ind. Co., Ltd.), 02 June, 1992 (02.06.92), Claims (Family: none)	1-20

国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP00/03621

A. 発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC))

Int. C1', C08L 23/22, C08L 23/26, C08L 53/02, C08K 5/5415, C08G 81/02, C08J 5/12, C09K 3/10, C09J 153/02, C09J 123/22

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))

Int. C1', C08L 1/00-101/16

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926年-1996年

日本国公開実用新案公報 1971年-2000年

日本国実用新案登録公報 1996年-2000年

日本国登録実用新案公報 1994年-2000年

国際調査で使用した電子データベース(データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
P X	J P, 11-158331, A (鐘淵化学工業株式会社) 15. 6月. 1999 (15. 06. 99), 特許請求の範囲、 6欄3-12行、7欄4行-8欄5行 (ファミリーなし)	1-12, 18, 20
X	WO, 97/48778, A1 (HENKEL TEROSON GMBH) 24. 12月. 1997 (24. 12. 97), 要約を参照& E P, 906378, A1&DE, 19624236, A1	1-3, 8, 9, 12, 13-15, 17

C欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献(理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

09. 08. 00

国際調査報告の発送日

22.08.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官(権限のある職員)

小出 直也

印 4 J 9640

電話番号 03-3581-1101 内線 3493

C (続き) 関連すると認められる文献		関連する 請求の範囲の番号
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	
A	E P, 758029, A2 (Kanegafuchi Chemical Industry Co., Ltd.), 12. 2月. 1997 (12. 02. 97), 特許請求の範囲& J P, 8-81599, A&US, 5804253, A	1-20
A	E P, 312967, A1 (KANEGAFUCHI KAGAKU KOGYO KABUSHIKI KAISHA), 26. 4月. 1989 (26. 04. 89) 特許請求の範囲& J P, 1-198673, A&US, 5120379, A	1-20
A	E P, 839864, A2 (Kaneka Corporation) 6. 5月. 1998 (06. 05. 98), 特許請求の範囲& J P, 10-182904, A&CA, 2219508, A	1-20
A	J P, 4-159371, A (鐘淵化学工業株式会社) 2. 6月. 1992 (02. 06. 92), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-20

John W. Dyer, Jr., 1872